

JP6287005

Title:  
**PRODUCTION OF SUPERFINE PARTICLE**

Abstract:

**PURPOSE:**To produce simply dispersed superfine particles uniform in the particle shape and particle diameter at a low cost by performing a hydrolysis reaction and the growth of the produced particles after the hydrolysis in a Couette-Tiller vortex flow type reactor, when a metal alkoxide is hydrolyzed. **CONSTITUTION:**A Couette-Tiller vortex flow type reactor 5 comprising a coaxial double cylindrical reactor composed of an outer cylinder 7 and an inner cylinder 8 whose central axes are common is arranged. The metal alkoxide and other raw materials needed for the hydrolysis are received in raw material solution tanks 1 and 2, fed into a mixer 4 through constant volume pumps 3 respectively, and mixed with each other. The raw material mixture is fed into a space between the outer cylinder 7 and the inner cylinder 8 of the reactor 5. The outer cylinder 7 is made to stand still, and the inner cylinder 8 is rotated to form a Couette-Tiller vortex flow, thus hydrolyzing the metal alkoxide. After the hydrolysis reaction the produced particles are further allowed to grow in the reactor 5, and the produced superfine particles are recovered into a recovery container 6. The obtained superfine particles are suitable as a ceramic raw material, an adsorbent, etc.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平6-287005

(43) 公開日 平成6年(1994)10月11日

(51) Int.Cl.<sup>5</sup> 識別記号 庁内整理番号 F I 技術表示箇所  
C 0 1 B 13/32 9152-4G  
B 0 1 J 2/00 A

審査請求 未請求 請求項の数 1 F D (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平5-94895

(22) 出願日 平成5年(1993)3月31日

(71) 出願人 000000240  
小野田セメント株式会社  
山口県小野田市大字小野田6276番地

(71) 出願人 593078567  
荻原 隆  
福井県福井市乾徳3丁目7番20号

(72) 発明者 荻原 隆  
福井県福井市乾徳3丁目7番20号

(72) 発明者 柳川 昭明  
福井県福井市新田塚2丁目142番20号

(74) 代理人 弁理士 曾我 道照 (外6名)

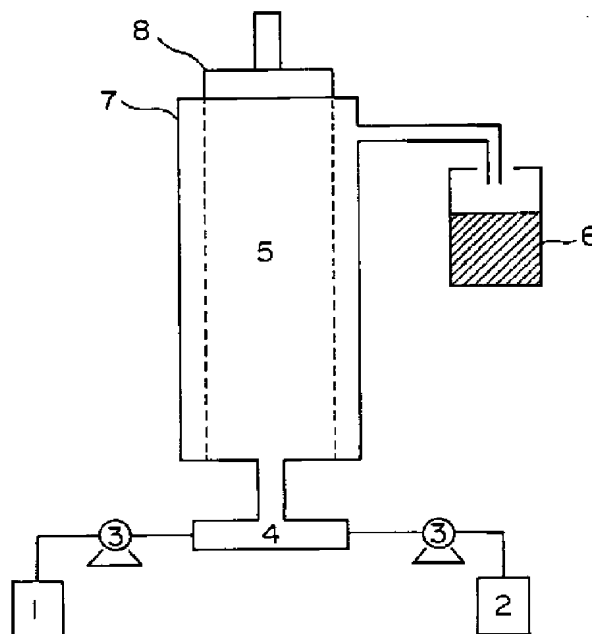
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 超微粒子の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 この発明は、セラミックスの原料粉末として、また研磨材や化粧品、電子材料等として利用できる粒子形状と粒径が均一で、単分散した超微粒子を、連続的に且つ低コストで製造することを目的とするものである。

【構成】 この発明の超微粒子の製造方法は、金属アルコキシドの加水分解によって超微粒子を連続的に製造する方法であって、加水分解および加水分解後の粒子成長をクエット・テイラー渦流れ型反応容器中で行うことを特徴としている。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属アルコキシドの加水分解によって超微粒子を連続的に製造する方法であって、加水分解および加水分解後の粒子成長をクエット・テイラー渦流れ型反応容器中で行うことを特徴とする超微粒子の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】この発明は、超微粒子の製造方法に関するもので、特により詳細にはセラミックスの原料や触媒担体、吸着材、研磨材、潤滑材、化粧品、薬品、磁性材料、電子材料、光学材料、塗料、写真乳剤等に利用される、粒径や組成が厳密に制御することができる超微粒子の製造方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】超微粒子はセラミックスの原料を初めとして、触媒担体、吸着材、研磨材、潤滑材、化粧品、薬品、磁性材料、電子材料、光学材料、塗料、写真乳剤等の種々の材料等の幅広い分野で活用が期待されている機能性粉末であり、多くの実用化研究が成されている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】所で、この様な超微粒子の製造方法として最もよく知られている方法の一つに、金属アルコキシドの加水分解法が挙げられる。この加水分解法は、超微粒子を生成させる手段としては比較的容易であり、また、生成する超微粒子の粒径制御が比較的容易に行えるという利点を有するが、その反面、この超微粒子製造プロセスは、ピーカースケールのバッチプロセスに依存しているために製造量の限界や、バッチ間同士での粒径および粒度分布のばらつき等の問題を有していた。

【0004】従って、この様なバッチプロセスに対して、本発明者らは、金属アルコキシドをベースに、超微粒子の連続した製造プロセスの開発に取り組み、連続合成装置を開発した。この連続合成装置については、例えば1991年、11月16日に開催された日本化学会近畿支部の北陸地区講演で明らかにされているが、例えば、この講演に従って当該連続合成装置を説明すると以下の通りである。

【0005】すなわち、この連続合成装置は、原料ホッパー、原料溶液を混合する攪拌槽、生成粒子の成長を行う熟成室、回収容器から構成されており、この連続合成装置によって超微粒子の連続製造を可能とした。この様な連続合成装置は、超微粒子の連続製造を可能とした点において画期的とも言えるが、超微粒子の製造量に対して連続合成装置自体の容量が極めて大きくなるといった問題が有った。特に、容積が嵩む工程は、生成粒子の成長を行うための熟成室である。この様な熟成室は、例えば細径のテフロンチューブ等が好適であるが、時間当たり50グラム程度の製造量を確保するためには直径4m

mのテフロンチューブで250～300mの長さが必要である。当然、これだけの長さのテフロンチューブを収納しようとするとは巨大な容積が必要とされるので、出来るだけ小さなスペースで処置できる様に、例えば、テフロンチューブを支柱に巻き付けたりする方法が考えられるが、この様な方法でも熟成室の寸法は50cm×50cm×200cm程度の大きさが必要である。また、この熟成室はテフロンチューブの入口から出口までの反応温度を一定に保つ為に、厳密な温度制御が必要であることから、温度制御のための制御装置等の費用が嵩むと言った問題を有していた。

【0006】今日までに開発されてきたこの様な超微粒子の製造方法は、上述の様な問題が有り、工業化に結び付けるにはまだ多くの技術的課題を抱えており、生産性が高く、コスト的にも安価に製造できる超微粒子に対する要求は極めて高いものとなっている。

【0007】従って、この発明の目的は上述のような従来における技術的な課題を解決するために、且つ上記の趣旨からも明らかな様に、セラミックスの原料粉末として、また研磨材や化粧品、電子材料等として利用できる粒子形状と粒径が均一で、単分散した超微粒子を、連続的に且つ低コストで製造する方法を提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するために、この発明に従った超微粒子の製造方法は、金属アルコキシドの加水分解によって超微粒子を連続的に製造する際、加水分解と加水分解後の粒子成長をクエット・テイラー渦流れ型反応容器で行うことを特徴とするものである。

【0009】本発明者らは、上記の要求を満足する超微粒子の製造方法の開発を目指し、種々研究を重ねた結果、金属アルコキシドの加水分解によって超微粒子を連続的に製造する際、加水分解と加水分解後の粒子成長をクエット・テイラー渦流れ型反応容器で行うことによって粒子形状と粒径が均一で、単分散した超微粒子が、安定して連続的に且つ低コストで得られることを見出し、本発明を完成するに至ったものである。

## 【0010】

【作用】すなわち、この発明においては、金属アルコキシドの加水分解と加水分解により生成した微粒子の粒子成長に、クエット・テイラー渦流れ型反応容器を用いることが必須条件の1つである。このクエット・テイラー渦流れ型反応容器は、原料溶液に対して、クエット・テイラー渦流れを発生させ、このクエット・テイラー渦流れ型反応容器で金属アルコキシドを加水分解し、均一核生成と、粒子の成長を同時に行って単分散粒子を合成するものである。この様なこの発明の超微粒子の製造方法を実施するための製造装置を解り易く説明するために、以下に添付図面を参照して詳細に説明する。

【0011】図1は、この発明の超微粒子の製造方法を実施するために使用するクエット・テイラー渦流れ型反応容器の基本的構造を示す概要図である。いま、図1に従って説明すると、製造装置は原料溶液槽1、2と原料供給器（定量ポンプ）3と混合器4とクエット・テイラー渦流れ型反応容器5と回収容器6とから主に構成されている。このクエット・テイラー渦流れ型反応容器5は、共軸2重円筒製の反応容器であって、通常、中心軸を共有するガラス製外円筒7と塩化ビニル製等の内円筒8で構成されている。外円筒7と内円筒8の間に流体を満し、内円筒8を回転し、外円筒7を静止すると、流体は内円筒8の回転による粘性摩擦力に引きずられて層流の回転流を形成する。この流れをクエット・テイラー渦流れと呼ぶが、このクエット・テイラー渦流れに一定流量の軸流れを与えると、局所的に混合が良くなり、且つ反応容器5内で押し出し流れになる。次に、内円筒8の回転によって、反応容器5内では互いに孤立した数十層の渦が発生する。このために、各渦がバッチの反応槽の役割を成していることになる。すなわち、一つ一つの渦が、前記したテフロンチューブの役割を果たすので、反応容器5自体の容積は極めて小さくすることが出来る。更に、この様な反応容器5の容積の減少は、例えば、上述したテフロン製チューブの反応容器を用いた連続製造装置（装置寸法：50cm×50cm×200cm）と同等の製造能力（50g/時間）を持たせるためには、この様なクエット・テイラー渦流れ型反応容器を用いたこの発明の連続製造装置では外円筒7の直径が8cm、長さが40cm程度の装置寸法で対応することが出来る。

【0012】このクエット・テイラー渦流れ型反応容器5は、前述した様な渦の発生によって反応が生じる訳であるが、この際に、単分散されずに凝集した粒子が生成した場合には、この凝集した粒子は反応容器5の底部に沈降し、製品と分離される、所謂、分級作用も有している点も大きな特徴の1つと言える。尚、渦の形成のし易さを促すために、クエット・テイラー渦流れ型反応容器5の内円筒8と外円筒7の直径の差は大きいほど好ましい。

【0013】尚、テイラー渦流れ型反応容器5で反応を完結し、回収容器中に回収された超微粒子は、そのままスラリーの状態でも使用することも出来るし、乾燥あるいは焼成することによって乾粉として使用してもよい。この時の乾燥および焼成には、どのような方法を採用しても良いが、単分散状態が維持される様に出来るだけ流動状態で乾燥あるいは焼成するのが良い。

【0014】

【実施例】以下に、この発明を実施例によって更に説明

するが、下記の実施例はこの発明を何等制限するものではなく、前後の趣旨に徴して設計変更することはいずれもこの発明の技術的範囲に含まれるものである。

【0015】（実施例1）図1に示す製造装置を用いて、単分散アルミナ微粒子の合成を行った。まず、アルミニウムセカンダリーブトキシド  $\{Al(sec-OCH_3)_3\}$  を60℃でオクタノールに溶解し、0.05mol/l濃度に調製した。これに0.2g/lのHPC/オクタノール溶液およびアセトニトリルを添加して、総量250mlにした。ここでオクタノールとアセトニトリル溶媒の体積比は60:40とした。次いで、両者を定量ポンプを用いて、等速度（25ml/min）で、T字型混合器に送り込んだ。数秒混合した後、内円筒の直径が5cm、外円筒の直径が8cm、長さが40cmのクエット・テイラー渦流れ型反応容器内に送り込み、加水分解反応を行った。容器内の回転数は70rpmとし、5cm/minの速度で反応溶液を上方へ押し上げた。反応温度は25℃とした。反応終了後に、生成粒子は溶液と共にタンクに回収した。その後、遠心分離機で粒子と溶液を分離し、流動式乾燥・焼成炉にて単分散アルミナの超微粒子を得た。この超微粒子は、図2に示すように、単分散した球状粒子であり、且つ、図3に示す如く、平均粒子径が0.347μm、σg=1.140の極めて粒度分布がシャープな超微粒子であった。

【0016】

【発明の効果】この発明の超微粒子の製造方法に依れば、上述した構成の製造装置を採用することによって、セラミックスの原料や種々の機能性粉末として活用できる、粒子形状と粒径が均一で、単分散した超微粒子を安定、連続して且つ低コストで提供することが出来る。

【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の超微粒子の製造方法を実施するために用いるクエット・テイラー渦流れ型反応容器の構造図である。

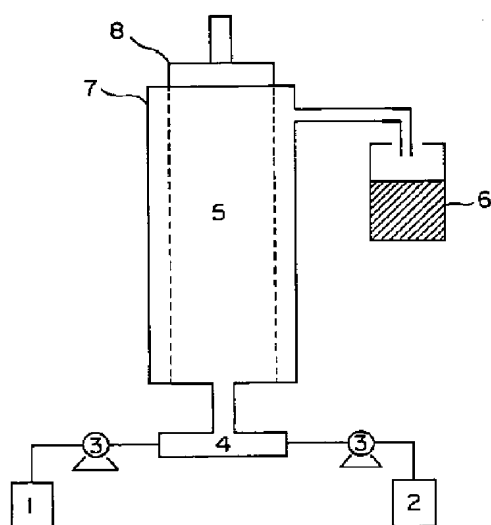
【図2】実施例1で得られたアルミナ粉末の電子顕微鏡写真である。

【図3】実施例1で得られたアルミナ粉末の粒度分布図である。

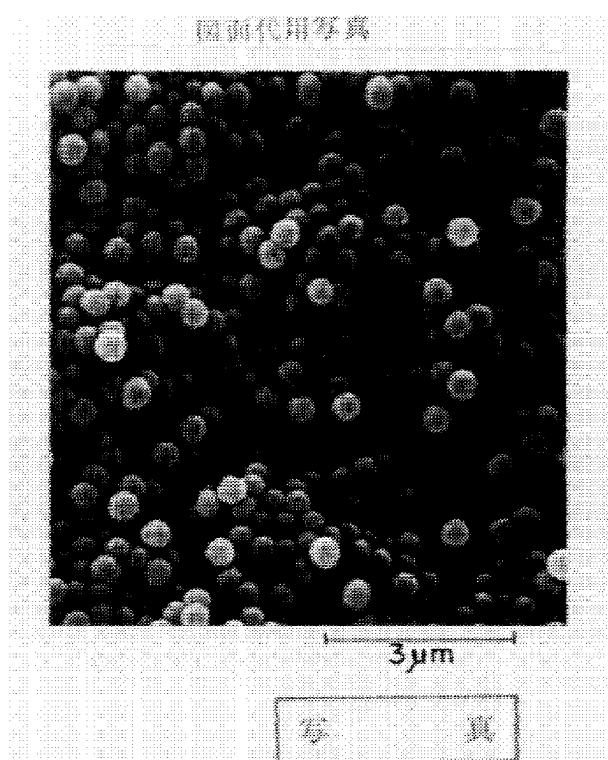
【符号の説明】

- |   |                   |
|---|-------------------|
| 1 | 原料溶液槽             |
| 2 | 原料溶液槽             |
| 3 | 原料供給器（定量ポンプ）      |
| 4 | 混合器               |
| 5 | クエット・テイラー渦流れ型反応容器 |
| 6 | 回収容器              |
| 7 | 外円筒               |
| 8 | 内円筒               |

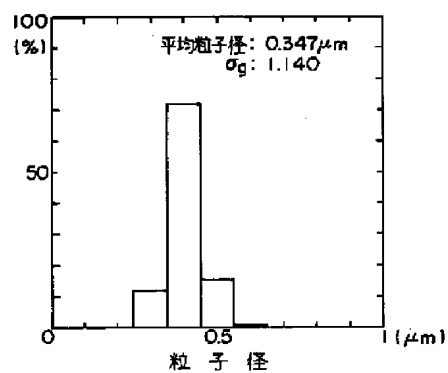
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(72)発明者 小川 賢治  
 千葉県佐倉市大作2丁目4番2号 小野田  
 セメント株式会社中央研究所内

(72)発明者 永田 憲史  
 千葉県佐倉市大作2丁目4番2号 小野田  
 セメント株式会社中央研究所内

(72)発明者 井口 真仁  
 千葉県佐倉市大作2丁目4番2号 小野田  
 セメント株式会社中央研究所内